

# OPTICAL ELEMENT AND MANUFACTURE THEREOF

Patent number: JP10189238

Publication date: 1998-07-21

Inventor: TAMURA SHINICHIRO

Applicant: SONY CORP

Classification:

- international: *H05B33/04; H01L51/50; H05B33/12; H05B33/14; H01L51/52; H05B33/04; H01L51/50; H05B33/12; H05B33/14; (IPC1-7): H05B33/04*

- european:

Application number: JP19960350715 19961227

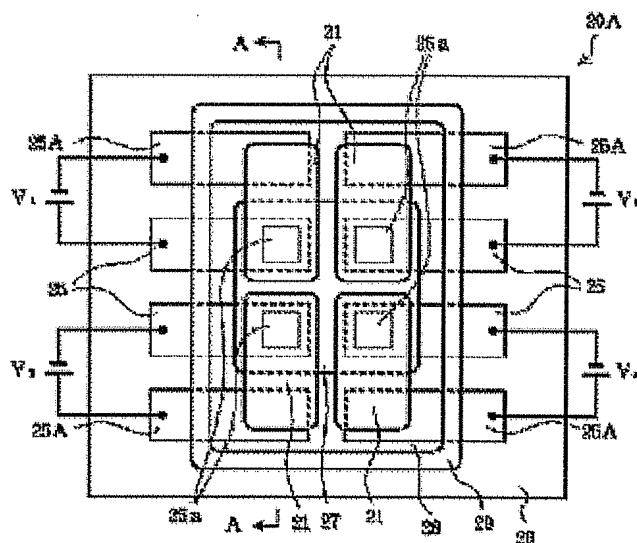
Priority number(s): JP19960350715 19961227

[Report a data error here](#)

## Abstract of JP10189238

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide an optical element preventing oxidization of a metal electrode and having superior operation stability and a manufacturing method thereof.

**SOLUTION:** A laminating body consisting of an ITO translucent electrode 25 formed on a substrate 26, an organic layer, and a metal electrode 21 is coated by a container in which an ultraviolet-ray curing resin 29 is applied to a rim of a glass plate 28 provided with a through hole, the ultraviolet-ray curing resin is adhered to the substrate 26, after which a nitrogen gas is implanted in a space in the container from the through hole and seals the through hole. Thereby, the air in the container is removed, and oxidation of the metal electrode can be prevented.



**Family list**

**1** family member for: **JP10189238**

Derived from 1 application

**1 OPTICAL ELEMENT AND MANUFACTURE THEREOF**

**Inventor:** TAMURA SHINICHIRO

**Applicant:** SONY CORP

**EC:**

**IPC:** *H05B33/04; H01L51/50; H05B33/12* (+7)

**Publication info:** **JP10189238 A** - 1998-07-21

---

Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-189238

(43)公開日 平成10年(1998)7月21日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
H 0 5 B 33/04

識別記号

F I  
H 0 5 B 33/04

審査請求 未請求 請求項の数34 O L (全 16 頁)

(21)出願番号 特願平8-350715

(22)出願日 平成8年(1996)12月27日

(71)出願人 000002185

ソニー株式会社

東京都品川区北品川6丁目7番35号

(72)発明者 田村 眞一郎

東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ  
ー株式会社内

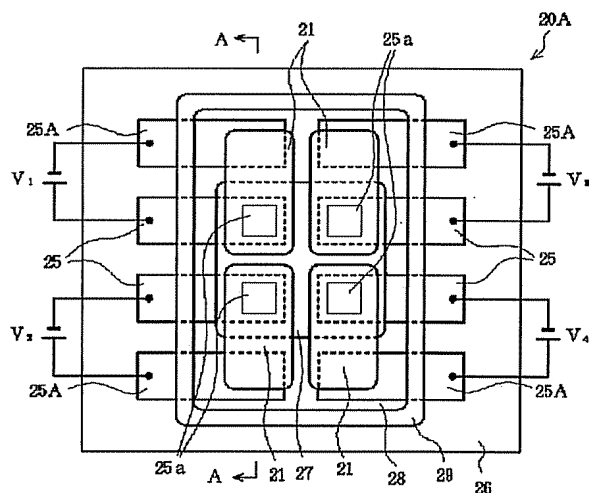
(74)代理人 弁理士 逢坂 宏

(54)【発明の名称】 光学的素子及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 金属電極の酸化を防止し、動作安定性の優れた光学的素子及びその製造方法を提供すること。

【解決手段】 基板26上に形成されるITO透明電極25、有機層及び金属電極21からなる積層体を、貫通孔28a、28bを設けたガラス板28の周縁に紫外線硬化樹脂29を施した容器で被覆し、紫外線硬化樹脂を基板26に接着後に、貫通孔28aから容器内の空間に窒素ガスを注入して貫通孔28a、28bを封じる。これにより容器内の空気が除去されるので金属電極の酸化が防止できる。



【特許請求の範囲】

【請求項１】 基体上に配した電極上に、発光領域を含む積層体が設けられている光学の素子において、前記積層体を被覆して封入した封止材が前記基体上に固定され、前記封止材と前記基体との間の空間に不活性ガスが充填されていることを特徴とする光学の素子。

【請求項２】 不活性ガスとして窒素又は希ガスが１気圧以上の圧力で充填されている、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項３】 前記積層体が活性導電層を有しており、前記封止材が、前記活性導電層上の板状部と、この板状部をその周縁において前記基体に気密に固定した接着部とによって構成されている、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項４】 前記活性導電層が上部電極である、請求項３に記載した光学の素子。

【請求項５】 前記板状部が絶縁材からなっている、請求項３に記載した光学の素子。

【請求項６】 前記積層体が活性導電層を有しており、前記封止材がケーシング状のカバーによって構成され、このカバーの縁が前記基体に気密に固定されている、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項７】 前記活性導電層が上部電極である、請求項６に記載した光学の素子。

【請求項８】 前記封止材が導電性カバーからなっている、請求項６に記載した光学の素子。

【請求項９】 前記封止材にガス置換用の貫通孔が設けられ、この貫通孔を介して前記不活性ガスが充填される、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項１０】 前記基体に対する前記封止材の接着及び前記貫通孔の閉塞に紫外線硬化樹脂が用いられている、請求項９に記載した光学の素子。

【請求項１１】 前記基体上に複数の前記電極が下部電極として所定パターンにそれぞれ形成され、これらの下部電極のそれぞれの各一部分が島状に露出するように絶縁材が被着され、これらの露出部分上に前記積層体が設けられ、更にこの積層体上に上部電極が形成されている、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項１２】 前記積層体が複数の前記露出部分にそれぞれ設けられ、これらの積層体に前記上部電極が個々に形成されている、請求項１１に記載した光学の素子。

【請求項１３】 前記積層体が複数の前記露出部分に共通に設けられ、この積層体に前記上部電極が共通に形成されている、請求項１１に記載した光学の素子。

【請求項１４】 複数の前記電極が前記下部電極と前記上部電極に接続された配線とを含み、これらの下部電極及び配線の各端部が外部接続端子部となるように前記封止材が前記基体上に固定されている、請求項１１に記載した光学の素子。

【請求項１５】 光学的に透明な前記基体上に、下部電

極としての陽極、有機ホール輸送層、有機発光層及び／又は有機電子輸送層、及び上部電極としての陰極が順次積層されている、請求項１に記載した光学の素子。

【請求項１６】 有機電界発光素子として構成されている、請求項１５に記載した光学の素子。

【請求項１７】 カラーディスプレイ用の有機電界発光素子として構成されている、請求項１６に記載した光学の素子。

【請求項１８】 基体上に配した電極上に発光領域を含む積層体が設けられている光学の素子を製造するに際し、前記基体上に前記電極を形成し、この電極上に前記積層体を形成し、この積層体を被覆して封入する封止材を前記基体上に固定し、前記封止材と前記基体との間の空間に不活性ガスを充填する、光学の素子の製造方法。

【請求項１９】 不活性ガスとして窒素又は希ガスを１気圧以上の圧力で充填する、請求項１８に記載した製造方法。

【請求項２０】 前記積層体に活性導電層を設け、前記封止材を前記活性導電層上の板状部とこの板状部をその周縁において前記基体に気密に固定した接着部とによって構成する、請求項１８に記載した製造方法。

【請求項２１】 前記活性導電層を上部電極として設ける、請求項２０に記載した製造方法。

【請求項２２】 前記板状部を絶縁材で形成する、請求項２０に記載した製造方法。

【請求項２３】 前記積層体に活性導電層を設け、前記封止材をケーシング状のカバーによって構成し、このカバーの縁を前記基体に気密に固定させる、請求項１８に記載した製造方法。

【請求項２４】 前記活性導電層を上部電極として設ける、請求項２３に記載した製造方法。

【請求項２５】 前記封止材を導電性カバーで形成する、請求項２３に記載した製造方法。

【請求項２６】 前記封止材にガス置換用の貫通孔を設け、この貫通孔を介して前記不活性ガスを充填させる、請求項１８に記載した製造方法。

【請求項２７】 前記基体に対する前記封止材の接着及び前記貫通孔の閉塞に紫外線硬化樹脂を用いる、請求項２６に記載した製造方法。

【請求項２８】 前記基体上に複数の前記電極を下部電極として所定パターンにそれぞれ形成し、これらの下部電極のそれぞれの各一部分が島状に露出するように絶縁材を被着し、これらの露出部分上に前記積層体を設け、更にこの積層体上に上部電極を形成する、請求項１８に記載した製造方法。

【請求項２９】 前記積層体を複数の前記露出部分にそれぞれ設け、これらの積層体に前記上部電極を個々に形成する、請求項２８に記載した製造方法。

【請求項３０】 前記積層体を複数の前記露出部分に共通に設け、この積層体に前記上部電極を共通に形成す

る、請求項 28 に記載した製造方法。

【請求項 31】 前記下部電極と前記上部電極に接続された配線を含む複数の前記電極を設け、これらの下部電極及び配線の各端部が外部接続端子部となるように前記封止材を前記基体上に固定する、請求項 28 に記載した製造方法。

【請求項 32】 光学的に透明な前記基体上に、下部電極としての陽極、有機ホール輸送層、有機発光層及び／又は有機電子輸送層、及び上部電極としての陰極を順次積層する、請求項 18 に記載した製造方法。

【請求項 33】 有機電界発光素子として構成する、請求項 32 に記載した製造方法。

【請求項 34】 カラーディスプレイ用の有機電界発光素子として構成する、請求項 33 に記載した製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電界発光素子（例えば、電界発光素子の樹脂封止時に不活性ガスで内部を置換して封止する電界発光素子）に関するものである。

【0002】

【従来の技術】近年、マルチメディア指向の商品を初めとして、人間と機械とのインターフェースの重要性が高まってきている。人間がより快適に効率良く機械操作するためには、操作される機械からの情報を誤りなく、簡潔に、瞬時に、十分な量で取り出す必要があり、そのために、ディスプレイを初めとする様々な表示素子について研究が行われている。

【0003】中でも、軽量で高効率のフラットパネルディスプレイは、例えばコンピュータやテレビジョンの画面表示用として期待されている。一方、ブラウン管は輝度が高く、色再現性が良いため、現在ディスプレイとして最も多く使われているが、嵩高く、重く、また消費電力も高いということも今後解決すべき問題である。

【0004】フラットパネルディスプレイとしては、アクティブマトリックス駆動の液晶ディスプレイが既に商品化されている。しかしながら、視野角が狭く、また、自発光でないため周囲が暗い環境下ではバックライトの消費電力が大きいことや、今後実用化が期待されているところの、高精細度で高速のビデオ信号に対しては十分な応答性能を有していない等の問題点もある。更に、大画面サイズのディスプレイを製造するにはコストが高い等の課題もある。

【0005】これに対する代替として、発光ダイオードが可能性があるが、やはり製造コストが高く、また1つの基板上に発光ダイオードのマトリックスを製造することが難しい等の問題があり、ブラウン管に代わる低価格のディスプレイの候補としては、実用化までの課題が大きい。

【0006】上記の諸課題を解決できる可能性のあるフラットパネルディスプレイの候補としては、最近有機発

光材料が注目されている。これは、有機発光材料を用いることにより、自発光で、応答速度が高速であり、これにより視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの実現が期待されている。

【0007】図31は、有機発光材料を用いた従来の電界発光素子（以下、有機EL（エレクトロルミネセンス）素子と称することがある。）10の一例を示す。この有機EL素子10は、透明基板（例えばガラス基板）6上に、ITO（Indium tin oxide）透明電極5、ホール輸送層4、発光層3、電子輸送層2、陰極（例えばアルミニウム電極）1を例えば真空蒸着法で順次製膜したダブルヘテロ型である。

【0008】そして、陽極である透明電極5と陰極（以下、金属電極と称することがある。）1との間に直流電圧7を選択的に印加することによって、透明電極5から注入されたキャリアとしてのホールがホール輸送層4を経て、また陰極1から注入された電子が電子輸送層2を経て移動し、電子-ホールの再結合が生じ、ここから所定波長の発光8が生じ、透明基板6の側から観察できる。

【0009】発光層3には、例えばアントラセン、ナフタリン、フェナントレン、ピレン、クリセン、ペリレン、ブタジエン、クマリン、アクリジン、スチルベン、ユーロピウム錯体等の発光物質を使用してよい。これは、電子輸送層2に含有させることができる。

【0010】図32は、有機発光材料を用いた別の従来例を示すものであり、発光層3を省略し、電子輸送層2に上記の如き発光物質を含有させ、電子輸送層2とホール輸送層4との界面から所定波長の発光18が生じるように構成したシングルヘテロ型の有機EL素子20を示すものである。

【0011】図33は、上記の有機EL素子の具体例を示す。即ち、各有機層（ホール輸送層4、発光層3又は電子輸送層2）の積層体を陰極1と陽極5との間に配するが、これらの電極をマトリックス状に交差させてストライプ状に設け、輝度信号回路40、シフトレジスタ内蔵の制御回路41によって時系列に信号電圧を印加し、多数の交差位置（画素）にてそれぞれ発光させるように構成している。

【0012】従って、このような構成により、ディスプレイとしては勿論、画像再生装置としても使用可能となる。なお、上記のストライプパターンをR（赤）、G（緑）、B（青）の各色毎に配し、フルカラー又はマルチカラー用として構成することができる。

【0013】こうした有機EL素子を用いた、複数の画素からなる表示デバイスにおいて、発光する有機薄膜層2、3、4は一般に、透明電極5と金属電極1との間に挟まれており、透明電極5側で発光する。

【0014】上記のように、有機発光素子の構成は、透光性の正極と金属からなる陰極との間に発光材料を含む

有機薄膜を形成したものである。

【0015】このような有機EL素子としては、C. W. TangとS. A. VanSlyke等はApplied Physics Letters 第51巻12号 913～915頁（1987年）掲載の研究報告において、有機薄膜を正孔輸送材料からなる薄膜と電子輸送材料からなる薄膜との2層構造として、各々の電極から有機膜中に注入されたホールと電子が再結合することにより発光するいわゆるシングルヘテロ型の素子構造を開発した。

【0016】このシングルヘテロ型の有機EL素子は、正孔輸送材料又は電子輸送材料のいずれかが発光材料を兼ねており、発光は発光材料の基底状態と励起状態のエネルギーギャップに対応した波長帯で起きる。このような2層構造とすることにより、大幅な駆動電圧の低減、発光効率の改善が行われた。

【0017】その後、C. Adachi、S. Tokito、T. Tsutsui、S. Saito等のJapanese Journal of Applied Physics 第27巻2号 L269～L271頁（1988年）掲載の研究報告に記載されているような、正孔輸送材料、発光材料、電子輸送材料の3層からなるいわゆるダブルヘテロ構造の有機EL素子が開発された。

【0018】更に、C. W. Tang、S. A. VanSlyke、C. H. Chen等のJournal of Applied Physics 第65巻9号 3610～3616頁（1989年）掲載の研究報告に記載されている、電子輸送材料中に発光材料を含ませた素子構造等が開発されている。

【0019】これらの研究により、低電圧で、高輝度の発光の可能性が実証され、近年、有機EL素子の研究開発が非常に活発に行われている。しかしながら、実用化のためには、有機EL素子の封止技術等、解決すべき多くの課題を抱えているのが現状である。

【0020】図34は、シングルヘテロ型有機EL素子の封止構造を示す概略断面図である。図示の如く、基板6上に形成されたITO透明電極5、ホール輸送層4、電子輸送層2及び金属電極1の積層体が紫外線硬化樹脂膜9で封止されているが、この封止は一般に大気中で行われる。

【0021】このような有機EL素子は、陰極としてリチウム、マグネシウム、カルシウム等の活性な金属を使用するため、封止の際に空気を巻き込み易く、このため金属電極が酸化して整流作用が低下し、有機EL素子としての性能に重大な支障をきたすことがある。従って、長期に亘り素子が安定な動作を行うためには、空気中の水分、酸素を完全に遮断する必要がある、このような素子の封止技術は実用上の大きな課題となっている。

【0022】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記の如き事情に鑑みてなされたものであって、金属電極の酸化を防止するため効果的に封止され、かつ動作安定性の優れた光学的素子及びその製造方法を提供することを目的と

するものである。

【0023】

【課題を解決するための手段】本発明者は、上記の目的を解決するため鋭意検討を重ねた結果、金属電極と共に封入される空気を排除し、金属電極と空気との接触を絶って金属電極の酸化を防止する効果的な方法を見出し、本発明に到達したものである。

【0024】即ち、本発明は、基体上に配した電極上に、発光領域を含む積層体が設けられている光学的素子において、前記積層体を被覆して封入した封止材が前記基体上に固定され、前記封止材と前記基体との間の空間に不活性ガスが充填されていることを特徴とする光学的素子に係るものである。

【0025】また、本発明は、基体上に配した電極上に発光領域を含む積層体が設けられている光学的素子を製造するに際し、前記基体上に前記電極を形成し、この電極上に前記積層体を形成し、この積層体を被覆して封入する封止材を前記基体上に固定し、前記封止材と前記基体との間の空間に不活性ガスを充填する、光学的素子の製造方法に係るものである。

【0026】これにより、封止材と基体との間の空間に充填される不活性ガスにより、この空間の空気が排出されるため積層体が空気に触れることがない。従って、積層体に形成される上部電極の酸化が防止され、動作安定性に優れた光学的素子とその製造方法を提供することができる。

【0027】

【発明の実施の形態】本発明の光学的素子及びその製造方法において、不活性ガスとして窒素又は希ガスが1気圧以上の圧力で充填されていることが望ましい。

【0028】そして、上記の素子は、前記積層体に活性導電層が設けられ、前記封止材が、前記活性導電層上の板状部と、この板状部をその周縁において前記基体に気密に固定した接着部とによって構成されていることが望ましい。

【0029】この場合、前記活性導電層が上部電極として形成されており、前記板状部が絶縁材からなっていることが望ましい。

【0030】また、上記の素子は、前記封止材がケーシング状のカバーによって構成され、このカバーの縁が前記基体に気密に固定されていてもよく、この場合、前記封止材が導電性カバーからなっていることが望ましい。

【0031】また、上記の素子は、前記封止材にガス置換用の貫通孔が設けられ、この貫通孔を介して前記不活性ガスが充填されることが望ましい。

【0032】更に、前記基体に対する前記封止材の接着及び前記貫通孔の閉塞に紫外線硬化樹脂が用いられていることが望ましい。

【0033】そして、上記の素子は、前記基体上に複数の前記電極が下部電極として所定パターンにそれぞれ形

成され、これらの下部電極のそれぞれの各一部分が島状に露出するように絶縁材が被着され、これらの露出部分上に前記積層体が設けられ、更にこの積層体上に上部電極が形成されていることが望ましい。

【0034】この場合、前記積層体が複数の前記露出部分にそれぞれ設けられ、これらの積層体に前記上部電極が個々に形成されていることが望ましい。

【0035】また、前記積層体が複数の前記露出部分に共通に設けられ、この積層体に前記上部電極が共通に形成されていてもよい。

【0036】そして、上記の素子は、複数の前記電極が前記下部電極と前記上部電極に接続された配線とを含み、これらの下部電極及び配線の各端部が外部接続端子部となるように前記封止材が前記基体上に固定されていることが望ましい。

【0037】このように構成する上記の素子は、光学的に透明な前記基体上に、下部電極としての陽極、有機ホール輸送層、有機発光層及び／又は有機電子輸送層、及び上部電極としての陰極が順次積層されていることが望ましい。

【0038】これにより、有機電界発光素子として好適に構成され、好適なカラーディスプレイ用の有機電界発光素子として構成することができる。

【0039】

【実施例】以下、本発明の実施例を詳細に説明するが、本発明が以下の実施例に限定されるものでないことは勿論である。

【0040】図1は本発明の第1の実施例を示す平面図であり、図2は第3の実施例を示す平面図であるが、いずれも本発明の基本構成を模式的に示した概略図である。即ち、本発明は、図1のような構成を基本とする第1の実施例及び第2の実施例と、図2のような構成を基本とする第3の実施例及び第4の実施例とを有している。

【0041】これらの構成の詳細については後述するが、いずれも共通する製造工程の後に、図1に示す第1の実施例は有機層が画素単位で形成され、カソードも個別配線になっており、図2に示す第3の実施例は有機層が各画素共通に形成され、カソードも共通配線とされている。そして、図1及び図2の場合も積層体の封止が後述する2通りの封止方法により形成される。

【0042】即ち、図1及び図2共に、所定パターンに形成したITO透明電極25上にSiO<sub>2</sub>からなる絶縁膜27を設け、この絶縁膜27からITO透明電極25を島状に露出させ、この露出部25a上に有機層及びカソード電極が形成されている。

【0043】そして、図1の場合は、図示の如く、それぞれのITO透明電極25の露出部25aからそれぞれの隣接するITO透明配線25Aにカソード電極21が個々に設けられ、有機EL素子20Aが形成されてい

る。図2の場合は、それぞれのITO透明電極25の露出部25aとそれぞれの隣接するITO透明配線25Aとが共通のカソード電極21Aにより接続され、有機EL素子20Bが形成されている。

【0044】そして、いずれの場合も、露出部25aを有するITO透明電極25が陽極となり、これに隣接するITO透明配線25Aに陰極21又は21Aが接続され、陽極と陰極との間に各信号電源V<sub>1</sub>、V<sub>2</sub>、V<sub>3</sub>、V<sub>4</sub>がそれぞれ接続され、駆動される。

【0045】図3は、上記した本実施例の基本的な構造の理解を容易にするために、図1及び図2に示した有機EL素子の一製造工程段階における共通する構造を示した斜視図である。即ち、基板26上に所定パターンのITO透明電極25及びITO透明配線25Aを形成し、このうち、ITO透明電極25の一部をSiO<sub>2</sub>絶縁膜27で被覆してその一部に開口27aを設け、被膜されたITO透明電極25の一部を露出させるものであり、これが共通する構造となっている。

【0046】図3において、ITO透明電極25の露出部25a上の仮想線で示す有機層22、24は、上記した図1の場合の個別の有機層を示しているが、図2の場合はこの有機層が共通に形成される。

【0047】本実施例の有機EL素子は、例えば図4に示す真空蒸着装置11を用いて後述する製造工程の下で作製される。図4はその真空蒸着装置11の概略断面図である。

【0048】この装置11の内部には、アーム12の下に固定された一対の支持手段13が設けられ、この双方の固定手段13、13の間には、透明ガラス基板26を下向きにし、マスク15(32、35、36)をセットできるステージ機構(図示省略)が設けられている。そして、ガラス基板26及びマスク15の下方には、支軸14aに支持されたシャッター14が配置され、その下方に所定個数の各種蒸着源18を配置する。各蒸着源は、電源19による抵抗加熱方式で加熱される。この加熱には、必要に応じてEB(電子線)加熱方式等も使用される。

【0049】上記の装置において、マスク15(32、35、36)は画素用等であり、シャッター14は蒸着材料用である。そして、シャッター14は支軸14aを中心に回転し、蒸着材料の昇華温度に合わせて、材料の蒸気流を遮断するためのものである。

【0050】本実施例として示す各図は前述したように、本発明の基本構造の理解を容易にするために示したものである。従って、実際には、例えば次に示すような有機EL素子の作製に適用するものであり、本実施例に示す各図は、次に示す有機EL素子の画素の4個を表すものでもあり、若しくは次に示す有機EL素子を例えば4個単位で本実施例の如く形成するものであってもよい。

【0051】図5は、上記の真空蒸着装置により作製する有機EL素子20の具体例を示す平面図である。即ち、サイズLが30mm×30mmのガラス基板26上に、サイズが2mm×2mmのITO透明電極5を上記した真空蒸着装置により所定の厚さで蒸着後に、全面にSiO<sub>2</sub>絶縁膜30を蒸着し、これを所定の画素パターンにエッチングして多数の開口31を形成し、ここに透明電極25をそれぞれ露出させる。従って、SiO<sub>2</sub>によって形成した2mm×2mmの発光領域(画素)PXに対し蒸着マスク15(32、35、36)を用いて各有機層24、22及び金属電極21を順次形成する。

【0052】上記した図4の真空蒸着装置11においては、図5のような多数の画素を有するもの以外に、サイズの大きい画素を単独に形成することもできる。

【0053】以下、各実施例をその製造工程に合わせてその構造等を詳細に説明する。

【0054】このような電界発光素子の作製方法は、例えば、C. W. TangとS. A. VanSlyke等のApplied Physics Letters 第51巻12号 913～915頁(1987年)掲載の研究報告、C. Adachi、S. Tokito、T. Tsutsui、S. Saito等のJapanese Journal of Applied Physics 第27巻2号 L269～L271頁(1988年)掲載の研究報告、C. W. Tang、S. A. VanSlyke、C. H. Chen等のJournal of Applied Physics 第65巻9号 3610～3616頁(1989年)、C. Adachi、T. Tsutsui、S. Saito等のApplied Physics Letters 第56巻9号 799～801頁(1990年)の研究報告等に記載されている公知の技術を用いることができる。

【0055】図6～図19は第1の実施例による有機EL素子の製造工程を示すものであり、上記した図1のA-A線断面に対応する断面図(後述する第2の実施例も同様である。)を示している。

【0056】まず、図6に示すガラス基板26は、大きさが50mm×50mm、厚さが2mmに形成されており、図7に示すように、基板26上の全面にスパッタリングによりアノード電極となるITO薄膜25'を形成する。

【0057】基板26の材料としては、ガラスの他にプラスチック及び他の適宜の材料を用いることができる。そして、アノード電極としては、ITOの他にSnO<sub>2</sub>等が使用できる。また、透明電極とこの上に設ける有機層の間に電荷物注入効率を改善するために有機物若しくは有機金属化合物からなる薄膜を挟持させてもよい。後述する他の実施例も同様である。

【0058】次いで、図8に示すように、ITO膜25'上にマスク31をかけて露光し、マスク開口31aの下部以外を除去し、図9に示すように所定パターンのITO透明電極25及びITO透明配線25A(幅W=5mm、長さL=15mm)を形成する。図9(a)

は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0059】次いで、図10に示すように、ITO透明電極25及びITO透明配線25Aが形成された基板26上の全面にSiO<sub>2</sub>絶縁膜27'を被膜し、この上に所定のマスク(図示省略)をかけてフォトエッチング加工して不要部分のSiO<sub>2</sub>膜27'を除去して所定パターンの絶縁膜27を形成し、更にこのSiO<sub>2</sub>膜27に、3mm×3mmの方形の開口27aを形成してITO透明電極25の一部分を島状に露出させる。

【0060】図11は、上記のように形成したITO透明電極25の露出部25aを示す図であり、(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0061】次いで、図12に示すように、上記の電極露出部25aの位置に符号し、5mm×5mmの開口15aを有するマスク15を用い、このマスクを図4の真空蒸着装置11に取付けてホール輸送層24を蒸着した。図12(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0062】このホール輸送層24としては、N, N'-diphenyl-N, N'-bis(3-methylphenyl) 1, 1'-biphenyl-4, 4'-dianiline(以下、単にTPDと称する。)を、 $<10^{-6}$  Torrの真空下で、抵抗加熱法により0.2～0.4nm/sの蒸発速度で50nmの厚さに蒸着した。

【0063】ホール輸送層に使用する材料としては、上記のTPD以外に例えば芳香族アミン類、ピラゾリン類等の公知の種々の材料を使用できる。また、ホール輸送層は単層であってもよいし、電荷輸送性能を上げるために積層した構造としてもよい。後述する他の実施例も同様である。

【0064】次いで、同じマスク15を用いて図13に示すように、ホール輸送層24上に電子輸送と発光を兼ねるtris-(8-hydroxyquinoline) aluminum(以下、単にAlq<sub>3</sub>と称する。)を0.2～0.4nm/sの蒸発速度で50nmの厚さに真空蒸着して電子輸送層22を形成した。

【0065】この電子輸送層22に用いる材料としては、アルミニウムや亜鉛の金属錯体化合物、芳香族炭素化合物、オキサジアゾール系化合物等が使用できる。後述する他の実施例も同様である。

【0066】上記の如く、発光性の有る材料で電子輸送層22を形成してもよく、ホール輸送層24と電子輸送層22との間に発光層だけの単独層を形成することもできる。また、電子輸送材料からなる薄膜と発光材料を電子輸送材料中に含ませた薄膜との積層構造、或いは電子輸送材料からなる薄膜と発光材料だけからなる薄膜の積層構造が使用できる。後述する他の実施例も同様である。

【0067】また、使用目的に合わせてテリレン誘導体をホール輸送層、発光層若しくは電子輸送層に使用でき



る。更にホール輸送層、発光層、電子輸送層以外に、発光効率を改善する目的で、ホールまたは電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含ませることもできる。後述する他の実施例も同様である。

【0068】次に、図14に示すように、開口32aを有するマスク32に取り替えて真空蒸着装置11により有機層22、24上にカソード電極21を形成した。この図の(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0069】この蒸着に際しては、蒸着マスク32を装置11内の真空下で交換して、図示の如く4個の有機層のそれぞれを覆い、かつ、その外側に配置したITO透明配線25Aと電気的に接続するように金属電極21を抵抗加熱により蒸着した。陰極21の金属としては例えばMg-Ag(30:1)合金を用い、膜厚は200nmに形成した。

【0070】そして更に、封止工程が完了する迄の金属電極21の劣化を防止するために、図15に示すように、同じマスク32を用いてこの金属電極21上にアルミニウムを約200nmの膜厚で真空蒸着して保護膜21Aを形成した。

【0071】陰極21の電極材料としては、Li、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の金属との合金或いは積層した構造が使用できる。また、陰極の厚さを調節することにより、用途にあった光透過率を得ることができ、透過型の有機電界発光素子も作製できる。この場合には、金属陰極の上に電気的接続を安定に保つために透明電極を形成してもよい。後述する他の実施例も同様である。

【0072】次いで、図16に示すように、上記した積層体の封止のためには、ITO透明電極25及び透明配線25A全体にわたり、幅 $W_1$ が25mm×長さ $L_1$ が35mmのサイズで厚さが2mmのガラス板28を使用し、このガラス板28には直径3mmの貫通孔28a、28bを2個設けた。この図の(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0073】次いで、図17に示すように、ガラス板28の縁に紫外線硬化樹脂29を施し、このガラス板28と基板26とを発光部全体を囲み紫外線硬化樹脂29を用いて窒素雰囲気中で接着した。この図の(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0074】次いで、図18に示すように、上記の如く形成した封止構造の一方の貫通孔28aから、窒素ガスGを5分間注入した後、2つの貫通孔28a、28bを紫外線硬化樹脂で封じて有機EL素子20Aを作製した。このように一方の貫通孔28aからの窒素ガスGの注入により、封止構造内の空気は他方の貫通孔28bから排出され、金属電極21の酸化要因は完全に除去される。

【0075】図19は、前記した図1のB-B線断面に

対応する図18のXIX-XIX線断面図である。

【0076】上記のような構造をなす封止容器の材質は、気密性が保たれれば、ガラス、金属セラミックス等の適宜の材料を使用することができる。そして、その形状も気密性が保てれば、適宜の形状であってよい。封止容器に設けるガス置換用の開口28a、28bの数は少なくとも1つ以上あればよく、その大きさや位置に制限はない。

【0077】また、使用する紫外線硬化樹脂29は気密性が保たれればよく、適宜の材料が使用できる。そして、作業能率を向上させるために紫外線硬化樹脂に増粘剤やフィラーを含ませてもよい。

【0078】また、容器内を置換するのに用いるガスは窒素以外に、アルゴン、ネオン、キセノン、クリプトン等の化学的に不活性なガスが使用でき、ガスの圧力は1気圧以上あればよい。更に、ガス置換に加えて、モレキュラーシープやシリカゲル等の乾燥剤、活性金属等の酸素吸収材を密封容器中に併用すれば、一層効果を高めることができる。上記を含むこのような他の材料等の応用は後述する他の実施例も同様である。

【0079】上記のように、窒素ガスGを注入した有機EL素子20Aと、これと同様に作製し、紫外線効果樹脂29で接着して封止後に窒素ガスGを注入しなかった有機EL素子とで動作安定性を評価した。

【0080】その結果、初期には両方の有機EL素子において、10Vの電圧で、電流密度20mAのときに約 $500\text{cd/m}^2$ の輝度を得られた。発光色は緑色であった。そして、更に通電を続けると、窒素ガスを使用しなかった有機EL素子は500時間後に輝度が初期の50%以下となった。一方、窒素ガスを使用した方は1000時間後も70%の輝度を保ち、本発明の効果が確かめられた。

【0081】本実施例によれば、従来の封止におけるように、封止に伴い空気を抱き込んで封止してしまうことがない。しかも、封止容器と封止される積層体との間に空間が形成され、この空間に不活性ガスを注入して内部の空気を排出後に、注入した不活性ガスを封入して注入口を封止するので、内部に封入された金属電極21や保護膜21Aの酸化要因が無くなる。

【0082】従って、有機EL素子の輝度保持時間を伸ばすことが可能になり、有機EL素子の動作安定性を向上させることができる。そして、これは後述する他の実施例についても共通する効果である。

【0083】図20～図24は、第2の実施例による有機EL素子の製造工程を示すものであり、上記した第1の実施例と共通の製造工程以後(第1の実施例における図16以後)の工程を示している。

【0084】本実施例が上記した第1の実施例と異なる点は、図20に示すように、封止にアルミニウム製容器33を使用していることである。この図において(a)

は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0085】この封止容器33は図20に示す如く、外寸法：幅 $W_2$ が25mm×長さ $L_2$ が38mmで厚さ5mmのアルミニウム製で、内寸法：幅 $w$ が20mm×長さ $l$ が30mmで高さ $h$ が3mmの凹部を形成したものである。そして、外部と凹部とを通じるように直径4mmの貫通孔33a、33bを設けた。

【0086】そして、図21に示すように、この容器33を基板26上に形成した積層体の上に被覆させてから、図22に示すように、容器33の内部周縁部の全面にシリカゲルをエポキシ樹脂34aで接着した。

【0087】次いで、図23に示すように、この容器33の内周縁の接着後、真空乾燥器内で加熱を行い十分にガス出しを行った後、窒素雰囲気下で容器33の外周縁に紫外線硬化樹脂34bを施し、基板26に密着させ、基板26側から紫外線を照射して容器33を基板26に接着した。

【0088】次いで、図23に示すように、一方の貫通孔33aを介して、容器33内に窒素ガスGを10分間通じた後、貫通孔33a、33bを紫外線硬化樹脂で封じて有機EL素子20A'を作製した。

【0089】図24は、前記した図1のB-B線断面に対応する図23のXXIV-XXIV線断面図である。

【0090】上記のように窒素ガスGを注入した有機EL素子20A'と、これと同様に作製し紫外線硬化樹脂34b及びエポキシ樹脂34aで接着して封止後に窒素ガスGを注入しなかった有機EL素子とで実施例1と同様に動作安定性を評価した。

【0091】その結果、初期には両方の有機EL素子において、10Vの電圧で、電流密度20mAのときに約500cd/m<sup>2</sup>の輝度が得られた。発光色は緑色であった。そして、更に通電を続けると、窒素ガスを使用しなかった有機EL素子は540時間後に輝度が初期の50%以下となった。前記した第1の実施例のシリカゲルを用いなかった場合と比較して動作時間が伸びたのは、シリカゲルを用いた効果が現れたと考えられる。一方、窒素ガスを使用した方では1000時間後も75%の輝度を保ち、本発明の効果が確かめられた。

【0092】図25～図29は、第3の実施例による有機EL素子の製造工程を示すものであり、上記した図2のA'-A'線断面に対応する断面図(後述する第4の実施例も同様)を示し、上記した第1の実施例と共通の製造工程以後(第1の実施例における図12以後)の工程を示している。

【0093】本実施例は、前述したように図2に示した有機EL素子であり、有機層及び陰極の配線が共通に設けられている。即ち、一部分の製造工程が上記した第1の実施例と同様の製造工程を経て作製され、これにより形成されたITO透明電極25の露出部25a上に、第1の実施例とは異なる本実施例の構造を形成している。

【0094】図25は、本実施例のホール輸送層24Aの形成を示すものであり、前記した図4の真空蒸着装置11により、広幅な開口35aを有するマスク35を用い、第1の実施例と同様のTPDを同様の条件で蒸着してホール輸送層24Aを形成した。しかし本実施例の場合は、図示の如く、4つのITO電極の露出部25aに対して共通のホール輸送層24Aが形成されている。この図において、(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0095】次いで、図26に示すように、同じマスク35を用い、上記の如く形成したホール輸送層24A上に、第1の実施例と同様のAlq<sub>3</sub>を同様の条件で蒸着し、発光層を兼ねる電子輸送層22Aを形成した。

【0096】次いで、図27に示すように、更に広幅の開口36aを有するマスク36に替えて、第1の実施例と同様の条件下で上記した有機層22A、24Aを覆い、かつ、その外側に配したITO透明配線25Aと電気的に接続するように、第1の実施例と同様のMg-Ag(30:1)合金を蒸着して陰極23を形成した。この図の(a)は、(b)に示す平面図のa-a線断面図である。

【0097】次いで、図28に示すように、上記と同じマスク36を用い、第1の実施例と同様に金属電極23の劣化防止のために、この金属電極23上に第1の実施例と同様にアルミニウムを蒸着して保護膜23Aを形成した。

【0098】次いで、図29に示すように、上記した積層体を封止するために、第1の実施例と同様のガラス板28で覆い、同様の条件下で紫外線硬化樹脂29を用いて基板26を接着した。

【0099】そして、上記の如くに形成した封止容器の中に、第1の実施例と同様に窒素ガスGを注入した後、貫通孔28a、28bを紫外線硬化樹脂で封じて有機EL素子20Bを作製した。図29において、(a)は、(c)に示す平面図のa-a線断面図、(b)は同じく(c)のb-b線断面図である。

【0100】上記のように作製し窒素ガスGを注入した有機EL素子と、同様に作製し窒素ガスGを注入しない有機EL素子とにより、前記した第1の実施例と同様に素子の動作安定性を評価した。その結果、本実施例においても第1の実施例の場合とほぼ同様の効果が得られた。

【0101】図30は、第4の実施例による有機EL素子の製造工程を示すものであり、上記した第3の実施例における封止容器に代えて、前記した第2の実施例の場合と同様の封止容器を用い、有機EL素子20B'を作製したものである。

【0102】即ち、金属電極23及び保護膜23Aが形成された上に、前記した第2の実施例と同様のアルミニウム製容器33を被覆させ、同様に基板26に接する容

器 33 の内周縁を接着後、同様の条件で外周縁を接着して窒素ガス G を注入して貫通孔 33 a、33 b を封じたものである。

【0103】図 30 において、(a) は、(c) に示す平面図の a-a 線断面図、(b) は同じく (c) の b-b 線断面図である。

【0104】そして、上記のように作製し窒素ガス G を注入した有機 EL 素子と、同様に作製し窒素ガス G を注入しない有機 EL 素子とにより、前記した第 2 の実施例と同様に素子の動作安定性を評価した。その結果、本実施例においても第 2 の実施例の場合とほぼ同様の効果が得られた。

【0105】以上、本発明の実施例を説明したが、上述した実施例は本発明の技術的思想に基づいて種々に変形することができる。

【0106】例えば、積層体の封止構造は、上述した実施例以外の適宜な構造にすることができ、陽極、有機層及び陰極の形状や材料等も適宜に変更することができる。また、不活性ガスの注入方法についても変えることができる。

【0107】また、上記の実施例による有機 EL 素子の ITO 透明電極 5、ホール輸送層 4、電子輸送層 2、金属電極 1 は、それぞれが複数層からなる積層構造であってもよい。

【0108】また、上記実施例における各有機層は、蒸着以外にも、昇華又は気化を伴う他の成膜方法でも形成可能である。

【0109】また、アノード電極、電子輸送層、ホール輸送層、カソード電極等の材料は上記に限るものではなく、例えばホール輸送層であるならば、ベンジジン誘導体、スチリルアミン誘導体、トリフェニルメタン誘導体、ヒドラゾン誘導体等のホール輸送性有機物質を用いてもよい。同様に、電子輸送層には、ペリレン誘導体、ビススチリル誘導体、ピラジン誘導体等の電子輸送性有機物質を用いてもよい。

【0110】また、カソード電極材料については、効率良く電子を注入するために、電極材料の真空準位からの仕事関数の小さい金属を用いるのが好ましく、アルミニウム-リチウム合金以外にも、例えば、アルミニウム、インジウム、マグネシウム、銀、カルシウム、バリウム、リチウム等の低仕事関数金属を単体で、または他の金属との合金として安定性を高めて使用してもよい。

【0111】また、アノード電極側から有機電界発光を取り出すため、アノード電極には透明電極である ITO を用いたが、効率良くホールを注入するために、アノード電極材料の真空準位からの仕事関数が高いもの、例えば金、二酸化スズ-アンチモン混合物、酸化亜鉛-アルミニウム混合物の電極を用いてもよい。

【0112】なお、モノカラー用の有機 EL 素子は勿論、発光材料を選択することによって、R、G、B の三

色を発光するフルカラー用、又はマルチカラー用の有機 EL 素子を作製することができる。その他、本発明はディスプレイ用としてだけでなく、光源用としても使用可能な有機 EL 素子に適用できると共に、他の光学的用途にも適用することができる。

#### 【0113】

【発明の作用効果】本発明は、上述した如く、積層体を被覆して封入した封止材が基体上に固定され、前記封止材と前記基体との間の空間に不活性ガスが充填されているので、不活性ガスが充填される前にこの空間に存在していた空気が不活性ガスの充填と共に排除される。

【0114】従って、積層体に金属が含まれている場合には、この金属の酸化が防止できるため、例えば有機 EL 素子の封止にこれを適用すれば、金属電極の劣化が防止され動作安定性を維持することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の第 1 の実施例による有機 EL 素子を示す概略平面図である。

【図 2】同、第 3 の実施例による有機 EL 素子を示す概略平面図である。

【図 3】同、製造工程の一工程段階を示す概略斜視図である。

【図 4】同、実施例に使用した真空蒸着装置の概略断面図である。

【図 5】同、真空蒸着装置により作製した有機 EL 素子の具体例を示した平面図である。

【図 6】同、第 1 の実施例による有機 EL 素子の製造工程における一工程段階を示す断面図である。

【図 7】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図 8】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図 9】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 10】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 11】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 12】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 13】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図 14】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 15】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図 16】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 17】同、他の一工程段階を示し、(a) は断面図、(b) は平面図である。

【図 18】同、更に他の一工程段階を示す断面図である。

【図 19】図 18 の XIX-XIX 線断面図である。

【図 20】同、第 2 の実施例による有機 EL 素子の封止

容器を示し、(a)は断面図、(b)は平面図である。

【図21】同、製造工程における一工程段階を示す断面図である。

【図22】同、他の一工程段階を示し、(a)は断面図、(b)は平面図である。

【図23】同、更に他の一工程段階を示す断面図である。

【図24】図23のXXIV-XXIV線断面図である。

【図25】同、第3の実施例による有機EL素子の製造工程における一工程段階を示し、(a)は断面図、(b)は平面図である。

【図26】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図27】同、他の一工程段階を示し、(a)は断面図、(b)は平面図である。

【図28】同、他の一工程段階を示す断面図である。

【図29】同、更に他の一工程段階を示し、(a)は(c)のa-a線断面図、(b)は(c)のb-b線断面図、(c)は平面図である。

【図30】同、第4の実施例による有機EL素子の製造工程における一工程段階を示し、(a)は(c)のa-a線断面図、(b)は(c)のb-b線断面図、(c)は平面図である。

【図31】従来の有機EL素子の一例を示す概略断面図

である。

【図32】同、他の有機EL素子の一例を示す概略断面図である。

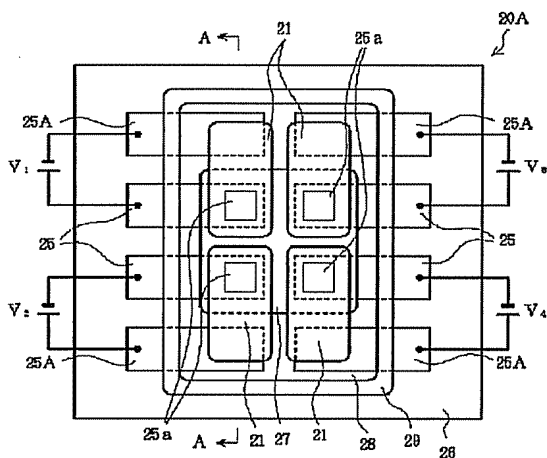
【図33】同、有機EL素子の具体例を示す概略斜視図である。

【図34】同、他の有機EL素子の封止状態を示す概略断面図である。

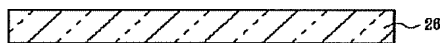
【符号の説明】

11…真空蒸着装置、12…アーム、13…固定手段、14…シャッター、14a…支軸、15、31、32、35、36…マスク、15a、31a、32a、35a、36a…開口、18…蒸着源、19…電源、20、20A、20A'、20B、20B'…有機EL素子、21、23…金属電極(陰極)、21A、23A…保護膜、22、22A…電子輸送層、24、24A…ホール輸送層、25…ITO透明電極、25'…ITO薄膜、25A…ITO透明配線、25a…露出部、26…基板、27、27'、30…絶縁膜、27a…開口部、28…封止用ガラス、28a、28b、33a、33b…貫通孔、29…紫外線硬化樹脂、33…封止用カバー、34a、34b…封止材、G…不活性ガス、W、W<sub>1</sub>、W<sub>2</sub>、w…幅、L、L<sub>1</sub>、L<sub>2</sub>、l…長さ

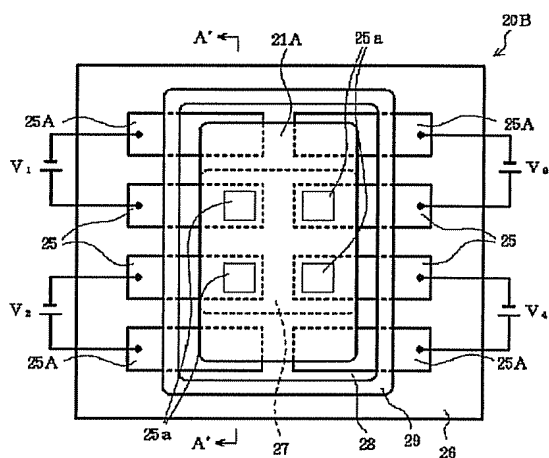
【図1】



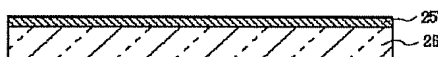
【図6】



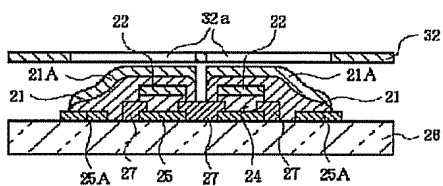
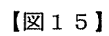
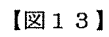
【図2】



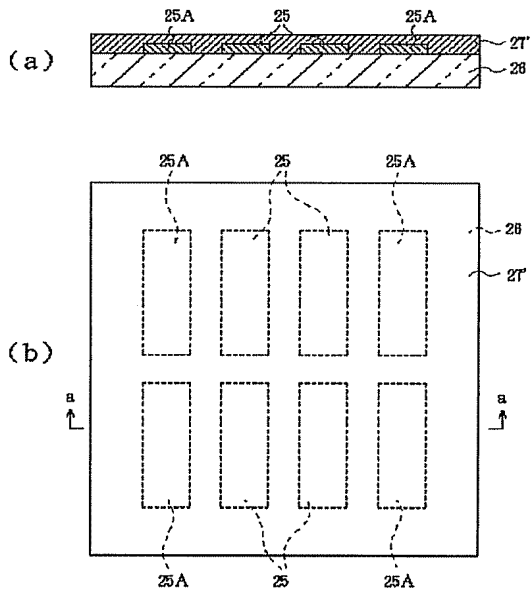
【図7】



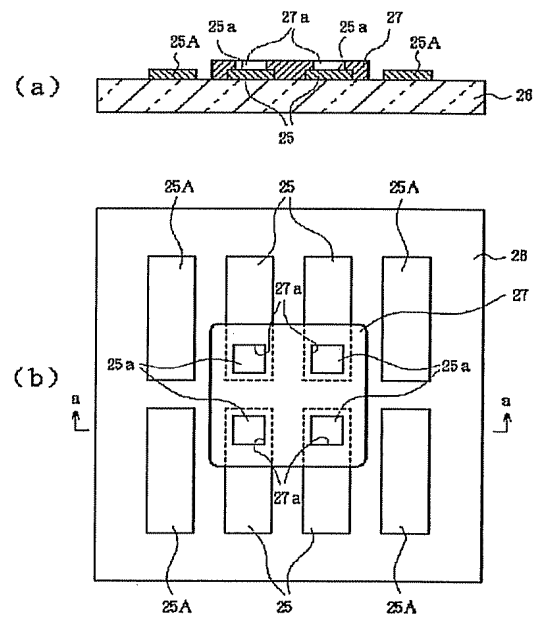
【図 3】



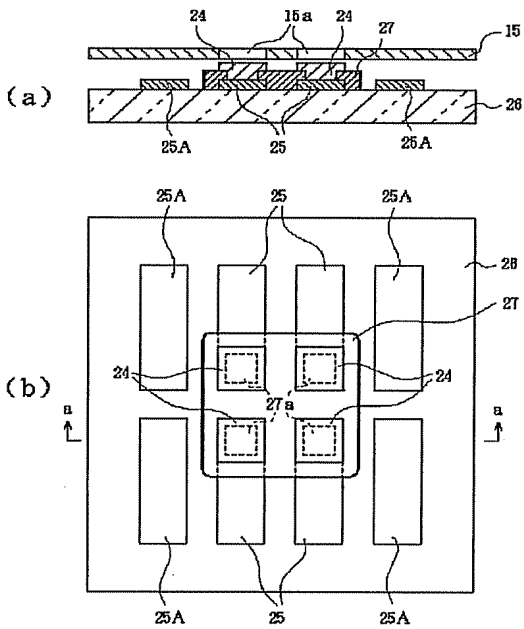
【図10】



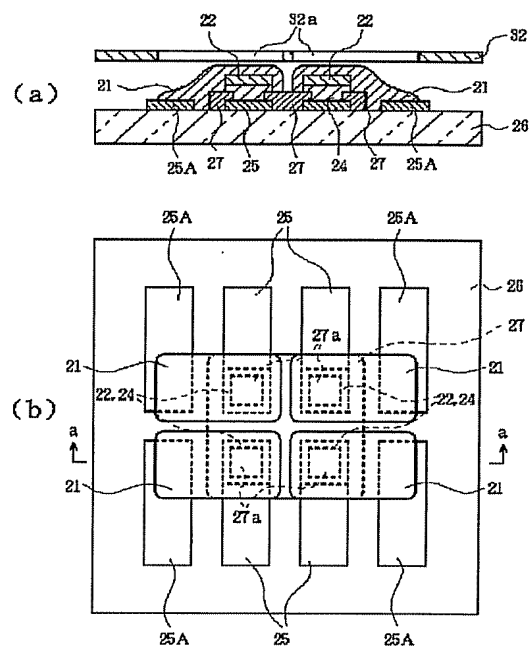
【図11】



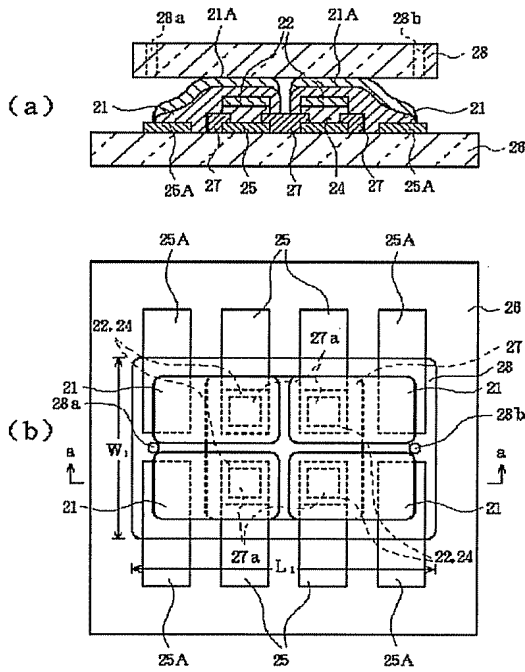
【図12】



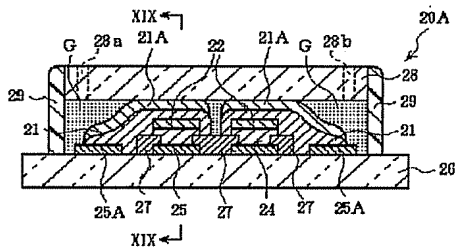
【図14】



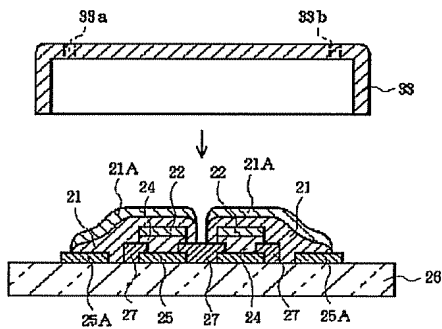
【図 16】



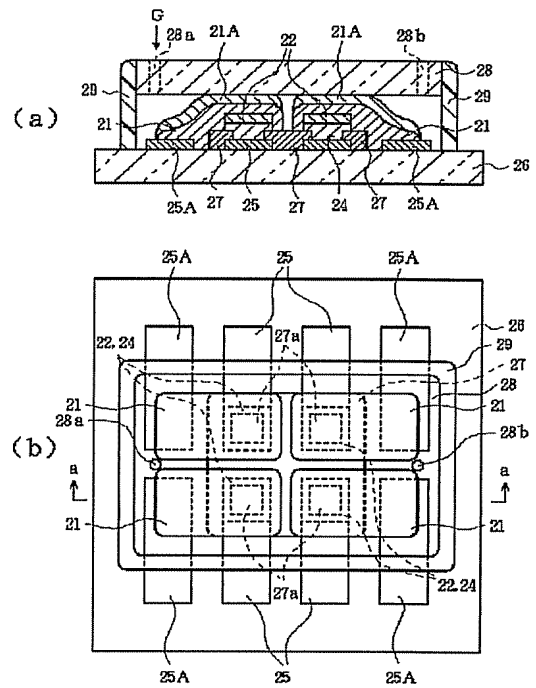
【図 18】



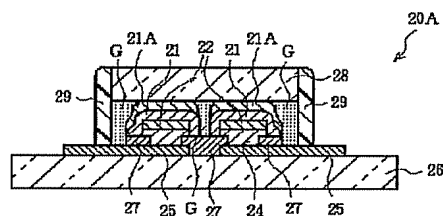
【図 2 1】



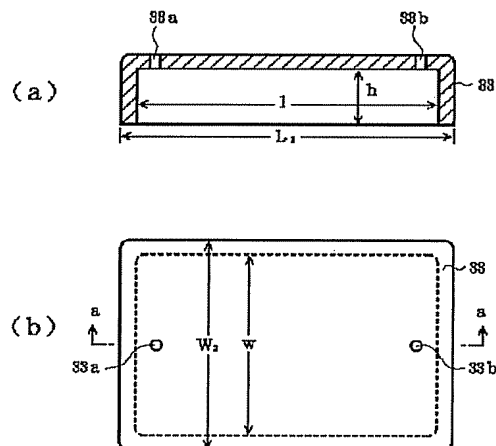
【図 17】



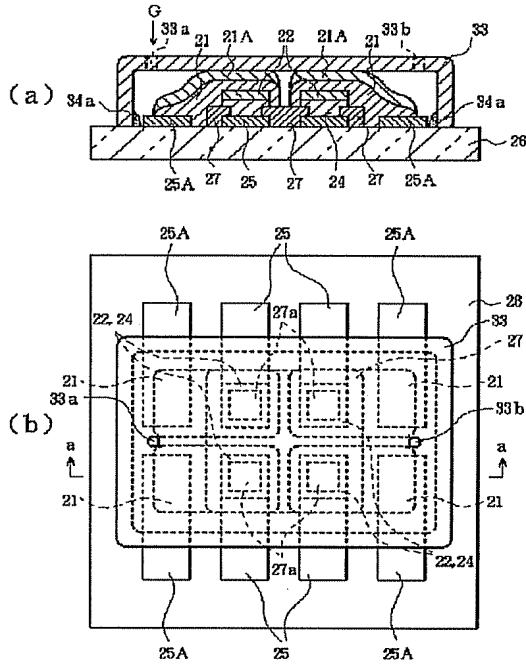
【図 19】



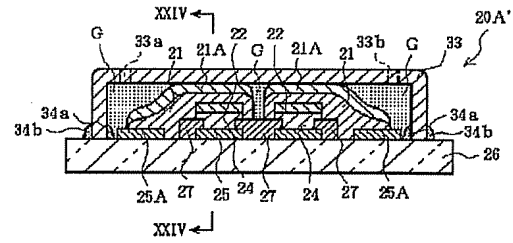
【図 20】



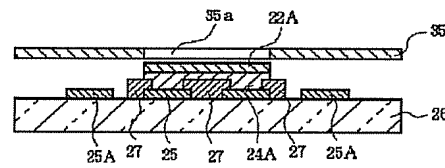
【図 22】



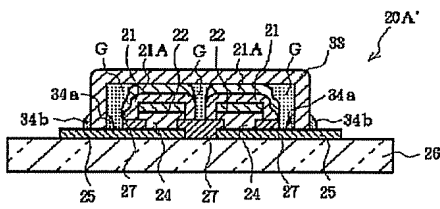
【図 23】



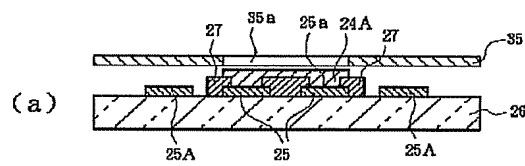
【图 26】



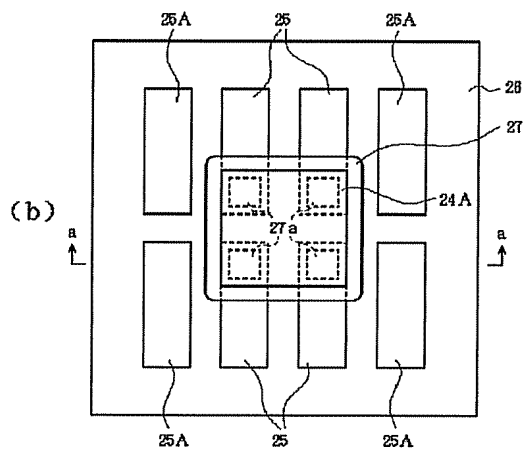
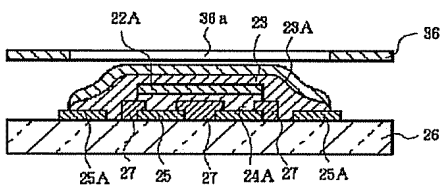
【図 24】



【図 25】

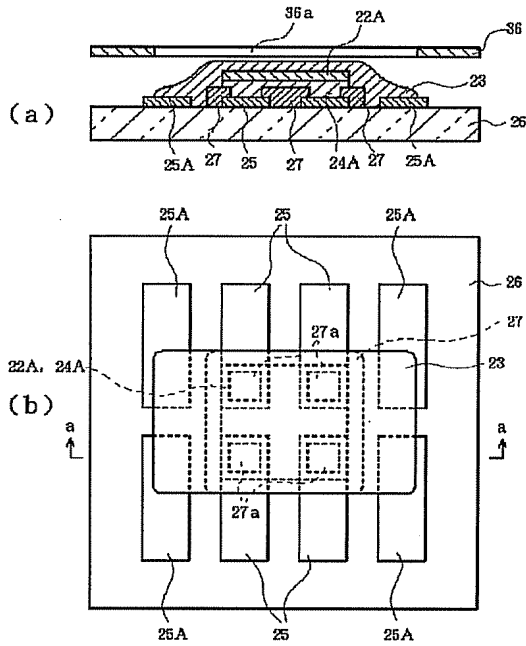


【圖 28】

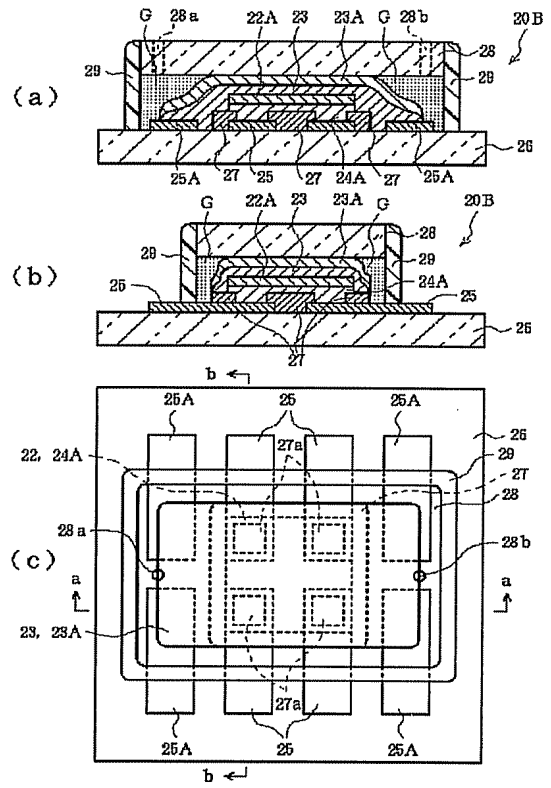




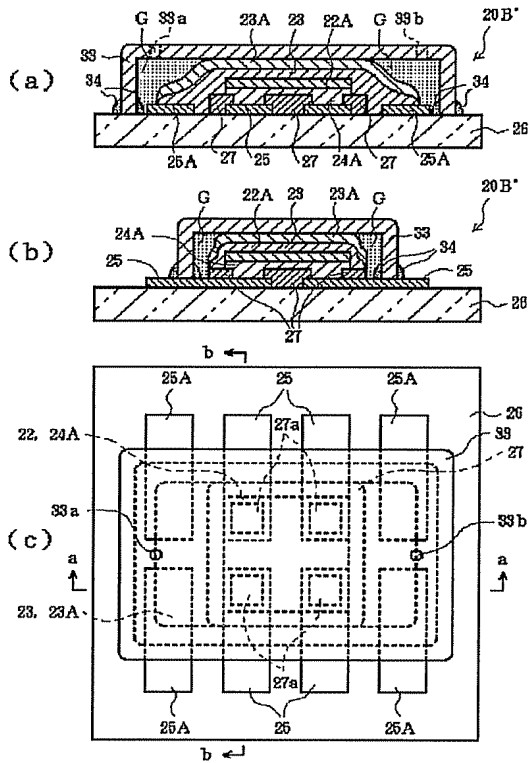
【図27】



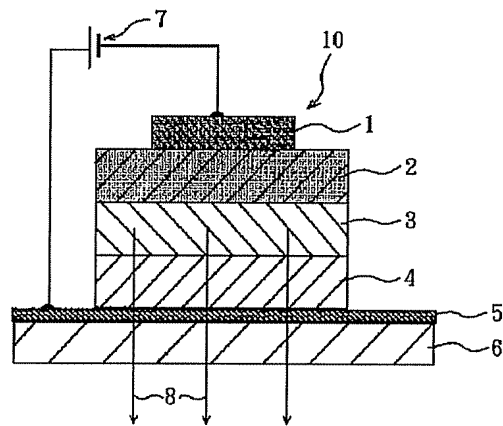
【図29】



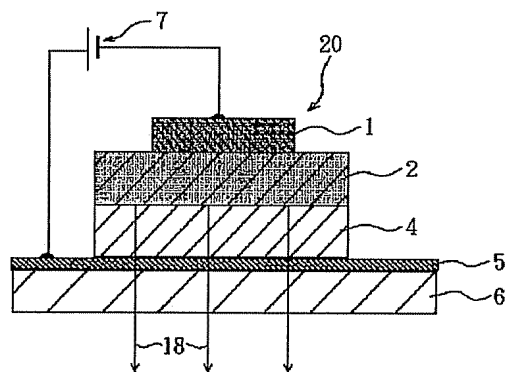
【図30】



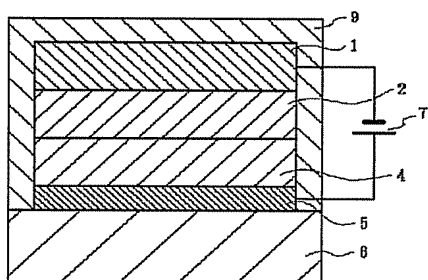
【図31】



【图 3 2】



【图 3 4】



【图 3 3】

